1/1 WPAT - ©Thomson Derwent - image

Accession Nbr:

2000-365885 [31]

Sec. Acc. Non-CPI:

N2000-273788

Title:

Membrane electrode unit for PEM fuel cell - has dry powdery catalyst pressed on membrane strip followed by cutting membrane electrode units when complete

Derwent Classes:

X16

Patent Assignee:

(SIEI) SIEMENS AG

Inventor(s):

DENNERLEIN K; GEBHARDT U

Nbr of Patents:

1

Nbr of Countries:

22

Patent Number:

WO200026982 A2 20000511 DW2000-31 H01M-008/10 Ger 10p *

AP: 1999WO-DE03319 19991015

DSNW: CA CN JP US

DSRW: AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE

Priority Details:

1998DE-1050119 19981030

Citations:

No-SR.Pub

IPC s:

H01M-008/10 H01M-004/88

Abstract:

WO200026982 A

The membrane electrode (ME) unit is designed for optimal electrochemical bonding and surface activity of the catalyst on the ME. The membrane has an active electrode catalyst layer on both of its sides free from additives and applied directly on the membrane.

The membrane is preferably Nafion-15 (TM) with a thickness of 130-140 um. ADVANTAGE - Enables simplified, less cost-intensive manufacture.(Dwg.1/1)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Manual Codes:

EPI: X16-C01 X16-C01C X16-E06 X16-E06A

Update Basic:

2000-31

Search statement

THIS PAGE BLANK (USPTO)

LDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATE

(51) Internationale Patentklassifikation 7: H01M 8/10, 4/88

A2

DE

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 00/26982

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

11. Mai 2000 (11.05.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE99/03319

(22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)

(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(30) Prioritätsdaten:

198 50 119.6

30. Oktober 1998 (30.10.98)

Veröffentlicht

Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).

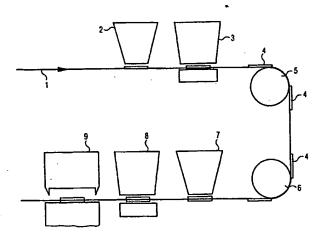
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DENNERLEIN, Klaus [DE/DE]; Oppelner Str. 11, D-91058 Erlangen (DE). GEBHARDT, Ulrich [DE/DE]; Zedernstr. 18, D-91094 Langensendelbach (DE).

AKTIENGE-SIEMENS (74) Gemeinsamer Vertreter: SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München

(54) Title: IMPROVED DIAPHRAGM ELECTRODE UNIT FOR A PEM FUEL CELL AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: VERBESSERTE MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT FÜR EINE PEM-BRENNSTOFFZELLE UND VER-FAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



(57) Abstract

The invention relates to a membrane electrode unit for a PEM fuel cell, whereby the active electrode catalyst layer is directly pressed onto the diaphragm in the form of a dry powder. The invention also relates to a low-cost mass production method for said diaphragm electrode unit (ME), whereby the dry catalyst powder is applied to the diaphragm strip using a sieve and is then processed without an additive using a press to form an electrode catalyst layer.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft eine Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht als trockenes Pulver direkt auf die Membran aufgepresst ist. Ausserdem betrifft die Erfindung ein kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Herstellungsverfahren für diese Membran-Elektroden-Einheit (ME), bei dem das trockene Katalysatorpulver einfach mit einem Sieb auf das Membranband aufgebracht wird und dann ohne ein Additiv mit einer Presse zu einer Elektrodenkatalysatorschicht verarbeitet wird.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL AM AT AU AZ BA BB BE BF BG BJ BR CCA CCI CM CN CU CZ DE DK EE	Albanien Armenien Österreich Australien Aserbaidschan Bosnien-Herzegowina Barbados Belgien Burkina Faso Bulgarien Benin Brasilien Belarus Kanada Zentralafrikanische Republik Kongo Schweiz Côte d'Ivoire Kamerun China Kuba Tschechische Republik Deutschland Dänemark Estland	ES FI FR GA GB GE GH GN GR HU IE IL IS IT JP KE KG KP LC LL LK LR	Spanien Finnland Frankreich Gabun Vereinigtes Königreich Georgien Ghana Guinea Griechenland Ungarn Irland Israel Island Italien Japan Kenia Kirgisistan Demokratische Volksrepublik Korea Republik Korea Kasachstan St. Lucia Liechtenstein Sri Lanka Liberia	LS LT LU LV MC MD MG MK MI MN MR MW MX NE NL NO NZ PL PT RO RU SD SE SG	Lesotho Litauen Luxemburg Lettland Monaco Republik Moldau Madagaskar Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien Mali Mongolei Mauretanien Malawi Mexiko Niger Niederlande Norwegen Neusceland Polen Portugal Rumanien Russische Föderation Sudan Schweden Singapur	SI SK SN SZ TD TG TJ TM TR TT UA UG US VN YU ZW	Slowenien Slowakei Senegal Swasiland Tschad Togo Tadschikistan Turkmenistan Turkei Trinidad und Tobago Ukraine Uganda Vereinigte Staaten von Amerika Usbekistan Vietnam Jugoslawien Zimbabwe
--	---	---	---	---	---	--	--

Beschreibung

5

10

25

Verbesserte Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle und Verfahren zu ihrer Herstellung

Die Erfindung betrifft eine Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht als trockenes Pulver direkt auf die Membran aufgepresst ist. Außerdem betrifft die Erfindung ein kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Herstellungsverfahren für diese Membran-Elektroden-Einheit (ME).

Bekannt sind ME bei denen der Katalysator als Paste oder Tinte, also unter Zusatz von einem Additiv wie einem Verlaufshilfsmittel, direkt auf die Membran durch Besprühen, Walzen oder mittels Siebdruck aufgebracht ist. Nachteilig an diesen ME ist, daß das Additiv später die Aktivität der Elektrodenkatalysatorschicht beeinträchtigt und ihren Innenwiderstand erhöht, insbesondere wenn es nicht rückstandsfrei entfernt wurde. Außerdem führt ein Additiv immer zur Quellung der Membran und stört damit deren Dimensionsstabilität.

Bekannt sind auch ME, bei denen der Katalysator auf eine Gasleitschicht zwischen die Membran und die aktive Elektrodenkatalysatorschicht aufgebracht ist. Dabei lagert sich ein nicht unbeträchtlicher Anteil an Elektrodenkatalysator in den Poren der Gasleitschicht ein, der dann nicht mehr katalytisch wirksam ist.

Aus der DE 195 09 749 Al ist ein Verfahren zur Herstellung einer ME bekannt, bei dem das trockene Katalysatorpulver zunächst auf einen Träger aufgebracht und mit diesem dann mit der Membran verpreßt wird. Nachteilig an diesem Verfahren ist erstens, daß ein Träger in die ME eingebaut wird, was einen zusätzlichen Arbeitsschritt bei der Herstellung und einen zusätzlichen Widerstand in der ME nach sich zieht und zweitens, daß die Oberfläche der aktiven Katalysatorschicht durch das

Anpressen der Katalysator-Trägerschicht in bezug auf Porengröße, Volumenkonzentration und/oder Porosität festgelegt ist.

Die bislang bekannten ME verfügen demnach über einen hohen Anteil Katalysator, der in der elektrochemischen Zelle oberflächen-unwirksam bleibt, weil er entweder in den Poren der Gasleitschicht eingelagert ist oder in einem Additiv (d.h. einem Verarbeitungs-Hilfsmittel) eingeschlossen ist.

10

Entsprechend zu den ME sind auch zwei Typen von Herstellungsverfahren für ME bekannt, erstens die direkte Aufbringung des Katalysators als Paste oder Tinte durch ein Sprüh-, Walzoder Siebdruckverfahren (im folgenden kurz als (1) bezeich-

net) und zweitens die Aufbringung und Verpresssung des Katalysators auf eine Gasleitschicht, die ihrerseits an die Membran anschließt(2).

Beide Verfahren haben den Nachteil, daß sie mehr als einen 20 Arbeitsabschnitt zur Herstellung einer ME brauchen, wie z.B. bei Verfahren (1):

- Herstellung der Paste
- Aufbringung der Paste auf die Membran
- Regeneration des Katalysators aus der Paste (wobei die Teilschritte nicht zwangsläufig nur einen Arbeitsschritt umfassen)

oder bei Verfahren (2)

- Verbindung der fertigen Gasleitschicht mit der Membran,
- Aufbringung des Katalysators auf der Gasleitschicht.

30

35

Als "Arbeitsabschnitt" (z.B. Herstellung der Paste) wird die Herstellung eines Zwischenproduktes bezeichnet, wohingegen als "Arbeitsschritt" (z.B. Trocknen der aufgebrachten Schicht) ein Prozeßschritt eines Verfahrens bezeichnet wird, der nicht zwangsläufig zu einem Zwischenprodukt führt.

Aufgabe der Erfindung ist es daher, die Ausnutzung oder Oberflächenwirksamkeit des Katalysators auf der ME und seine elektrochemische Anbindung zu optimieren und ein einfaches (d.h. nur einen Arbeitsabschnitt umfassendes), kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Verfahren zur Herstellung einer ME mit optimierter Katalysatorausnutzung zur Verfügung zu stellen.

Diese Aufgabe wird durch eine Membran-Elektroden-Einheit, eine Membran mit beidseitig einer aktiven Elektrodenkatalysatorschicht umfassend, gelöst, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht frei von Additiven ist und direkt auf die
Membran aufgebracht ist. Außerdem ist Gegenstand der Erfindung ein Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung einer
Membran-Elektroden-Einheit, folgende Arbeitsschritte umfassend:

- Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf das Membranband.
- Aufpressen des Katalysatorpulvers und
- 20 Abschneiden der fertigen Membran-Elektroden-Einheiten.

Bei der Ausgestaltung der Erfindung, die eine Nafion-15 einer Dicke von etwa 130-140 μ m als Membran haben, läßt sich die Verringerung des Innenwiderstandes durch den Einsatz der Erfindung bei der Herstellung der ME auf ca. 15% schätzen. Der Innenwiderstand beträgt bei den herkömmlich mit dieser Membran hergestellten ME ungefähr 130 m Ω *cm² und verringert sich bei Anwendung der Erfindung entsprechend auf ca. 110 m Ω *cm².

30

35

Eine Ausführungsform des Verfahrens ist, daß in einem kontinuierlichen Verfahren zunächst eine Seite der Membran mit Katalysator belegt wird, dann das Membranband über Umlenkrollen gewendet wird, bevor die andere Seite mit Katalysator belegt wird.

10

30

Vorteilhafterweise wird der Katalysator mit einem Sieb auf das Membranband aufgerüttelt. Durch die Kontur des Siebes, wie z.B. eckig, insbesondere rechteckig oder quadratisch, wird dabei die geometrische Abmessung der Kathode und/oder Anode realisiert.

Bei einer weiteren Ausführungsform des Verfahrens wird durch ein zusätzliches Sieb eine Fraktionierung des Katalysators möglich. Dadurch kann eine ME mit Schichtaufbau bzgl. Volumenkonzentration und/oder Porosität des Elektrodenkatalysators realisiert werden.

Durch den Einsatz verschiedener Siebe kann eine unterschiedliche Struktur der Oberfläche der aktiven Katalysatorschicht realisierbar sein. Dabei ist die Porosität bewirkt durch Po-15 renstruktur, Porengröße und/oder Volumenkonzentration variabel je nach Anforderung gestaltbar.

Ein Katalysatorträger kann nach der Herstellung auf die ME 20 aufgebracht werden.

Bei einer vorteilhaften Ausführungsform des Verfahrens wird das Membranband während der Bearbeitung feucht gehalten. Dies kann z.B. durch Sprühvorrichtungen und/oder Wasserfilme erfolgen. Vorteilhaft dabei ist, daß die feuchte Membran eine 25 konstante Form hat, die sie auch beim Betrieb in der elektrochemischen Zelle hat. Deshalb ist Dimensionsstabilität gegeben und es müssen keine Volumenänderungen durch Quellung oder Trocknung (wie das bei den bekannten Verfahren, die etliche Temper- und/oder Trocknungsschritte während der Herstellung unterlaufen, der Fall ist) einkalkuliert werden.

Bei einer anderen vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist der Katalysator, z.B. der Pt-Katalysator, entsprechend 35 seiner Anforderung (Kathode oder Anode etc.) vorbehandelt worden. So können z.B. hydrophobe Katalysatoren wie teflonisierte und/oder nafionisierte Pt-Katalysatoren zum Einsatz kommen.

Im folgenden wird das Verfahren noch anhand eines Ausfüh5 rungsbeispiels näher erläutert:

Die einzige Figur zeigt schematisch die einzelnen Arbeitsschritte:

Von links kommt das Membranband 1 unter das erste Sieb 2, in 10 dem, evtl. vorbehandeltes, trockenes Katalysatorpulver ist. Durch das Sieb 2 wird je nach Verweilzeit und Rüttelintensität eine vorbestimmte Menge des trockenen Katalysatorpulvers auf das Membranband aufgebracht. Nach der Belegung mit Katalysatorpulver wird durch die Presse 3 die Elektrodenkatalysa-15 torschicht auf dem Membranband 1 hergestellt. Das Membranband 1 mit der fertigen Elektrodenkatalysatorschicht 4 wird dann über die Umlenkrollen 5 und 6 umgedreht, so daß die andere, noch unbelegte Seite des Membranbandes 1 unter das zweite Sieb 7 zu liegen kommt. Dort wird wieder ein u.U. vorbehan-20 deltes und trockenes Katalysatorpulver, in einer durch Verweilzeit und Rüttelintensität einstellbaren Menge auf die Membran 1 aufgebracht. Durch die Presse 8 entsteht wieder eine fertige Elektrodenkatalysatorschicht auf dem Membranband 1. Am Ende des Verfahrens wird nur noch mit der Stanze 9 aus 25 dem Membranband 1 eine fertige ME ausgestanzt.

Die Erfindung beschreibt eine einfache Bandfertigung von ME.
Durch die Aufbringung des trockenen Katalysatorpulvers mit
einem Sieb auf die Membran wird eine optimale elektrolytische
Anbindung des Katalysators an die Membran erreicht, die eine
Verringerung des Innenwiderstandes der ME in der elektrochemischen Zelle zur Folge hat.

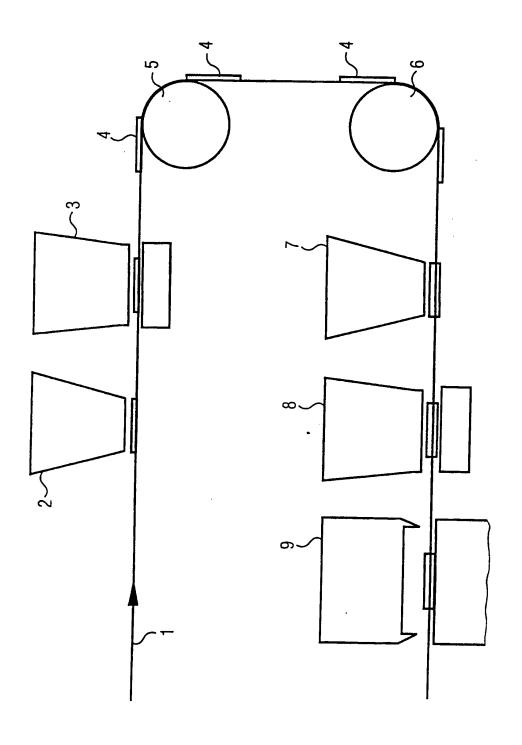
35 Mit dem Verfahren ist es möglich, die Membran während der Bearbeitung ohne großen Aufwand feucht zu halten.

Patentansprüche

- 1. Membran-Elektroden-Einheit, eine Membran und beidseitig eine aktive Elektrodenkatalysatorschicht umfassend, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht frei von Additiven ist und direkt auf die Membran aufgebracht ist.
 - 2. Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung einer Membran-Elektroden-Einheit, folgende Arbeitsschritte umfassend:
- 10 Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf das Membranband,
 - Aufpressen des Katalysatorpulvers und
 - Abschneiden der fertigen Membran-Elektroden-Einheiten.
- 15 3. Verfahren nach Anspruch 2, folgende Schritte umfassend:
 - Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf die erste Seite des Membranbandes,
 - Aufpressen des Katalysatorpulvers,
 - Wenden des Membranbandes über Umlenkrollen,
- 20 Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf die andere Seite des Membranbandes,
 - Aufpressen des Katalysatorpulvers und
 - Abschneiden der fertigen Membran-Elektroden-Einheit.
- 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 oder 3, bei dem das trockene Katalysatorpulver durch ein Sieb auf das Membranband aufgerüttelt wird.
- Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 4, bei dem das
 Membranband während der Verarbeitung feucht gehalten wird.
 - 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 5, bei dem über ein zusätzliches Sieb der Katalysator fraktioniert aufgebracht wird, so daß ein Schichtaufbau der Elektrodenkatalysa-
- 35 torschicht realisiert wird.

7

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 6, bei dem das Katalysatorpulver vor seiner Aufbringung vorbehandelt wurde.



ELTORGANISATION FUR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro LDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7:

H01M 8/10, 4/88, C25B 9/00

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 00/26982

A3

DE

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

11. Mai 2000 (11.05.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE99/03319

(22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)

(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(30) Prioritätsdaten:

198 50 119.6

30. Oktober 1998 (30.10.98)

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2,

D-80333 München (DE).

(72) Erfinder; und

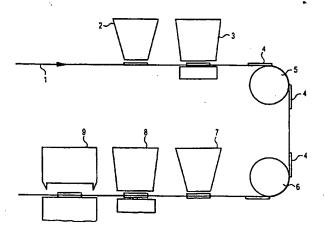
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DENNERLEIN, Klaus [DE/DE]; Oppelner Str. 11, D-91058 Erlangen (DE). GEBHARDT, Ulrich [DE/DE]; Zedemstr. 18, D-91094 Langensendelbach (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München (DE).

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 21. September 2000 (21.09.00)

(54) Title: MEMBRANE ELECTRODE UNIT FOR A PEM FUEL CELL AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT FÜR EINE PEM-BRENNSTOFFZELLE UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



(57) Abstract

The invention relates to a membrane electrode unit for a PEM fuel cell, whereby the active electrode catalyst layer is directly pressed onto the membrane in the form of a dry powder. The invention also relates to a low-cost mass production method for said membrane electrode unit (ME), whereby the dry catalyst powder is applied to the membrane strip using a sieve (2. 7) and is then processed without an additive using a press (3, 8) to form an electrode catalyst layer (4).

(57) Zusammenfassung

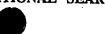
Eine Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht als trockenes Pulver direkt auf die Membran aufgepresst ist. Außerdem betrifft die Erfindung ein kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Herstellungsverfahren für diese Membran-Elektroden-Einheit (ME), bei dem das trockene Katalysatorpulver einfach mit einem Sieb (2, 7) auf das Membranband (1) aufgebracht wird und dann ohne ein Additiv mit einer Presse (3, 8) zu einer Elektrodenkatalysatorschicht (4)

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ne	. .				
AM	Armenien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Słowenien
AT	Österreich	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AU	Australien	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AZ	Aserbaidschan	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
BA		GB	Vereinigtes Königreich	MC	Моласо	TD	Tschad
BB	Bosnien-Herzegowina Barbados	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BE		GH	Ghana	MG	Madagaskar	ŢĴ	Tadschikistan
BF	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BG	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
B.J	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	
BR	Benin	ΙE	Irland	MN	Mongolei	UA	Trinidad und Tobago
	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien		Ukraine
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	UG	Uganda
CA	Kanada	ΙT	Italien	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten vor
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger		Amerika
CG	Kongo	KE	Kenja	NL	Niederlande	UZ	Usbekistan
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO		VN	Vietnam
Cl	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik		Norwegen	YU	Jugoslawien
CM	Kamerun		Котеа	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CN	China	KR	Republik Korea	PL	Polen		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	PT	Portugal		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RO	Rumänien		
DE	Deutschland	Li		RU	Russische Föderation		
DK	Danemark	LK	Liechtenstein	SD	Sudan		
EE	Estland		Sri Lanka	SE	Schweden		
		LR	Liberia	SG	Singapur		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT



Int tional Agention No

			PCT/DE !	8319
A. CLASSI IPC 7	FICATION OF SUBJECT MATTER H01M8/10 H01M4/88 C25B9/0	0		
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both national classific	cation and IPC		
	SEARCHED			
Minimum do	cumentation searched (classification system followed by classificat H01M C25B	ion symbols)		
	tion searched other than minimum documentation to the extent that			
Electronic d	ata base consulted during the International search (name of data b	ase and, where practical,	search terms used	
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the re	elevant passages		Relevant to claim No.
X	WO 97 23916 A (HOECHST AG ;CLAUS (DE); BOENSEL HARALD (DE); DECKE 3 July 1997 (1997-07-03)			1-3,5,7
	page 7, paragraph 2 - last parag page 9, paragraph 1 page 11, paragraph 4 page 18, paragraph 2 page 18, last paragraph -page 19 paragraph 3; figure 5 page 20, line 8 - line 11 page 26, paragraph 2 - paragraph figures 9,10 claims 16,19,32,39	,		
Υ		-/		4 -
X Furti	her documents are listed in the continuation of box C.	χ Patent family r	nembers are listed	in annex.
"A" docume consider filling of the citation of	ent defining the general state of the art which is not lered to be of particular relevance document but published on or after the international late ent which may throw doubts on priority claim(s) or is cited to establish the publication date of another in or other special reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or means ent published prior to the international filing date but an the priority date claimed	cited to understand invention "X" document of particu- cannot be consider involve an inventiv "Y" document of particu- cannot be consider document is comb	I not in conflict with d the principle or the lar relevance; the c red novel or cannot e step when the do lar relevance; the c red to involve an in- ined with one or mo ination being obviou	the application but cory underlying the lalmed invention be considered to coment is taken alone laimed invention ventive step when the re other such docu-
Date of the	actual completion of the international search	Date of mailing of t	he international sea	rch report
2	7 April 2000	08/05/2	000	
Name and r	mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer D'hondt	, J	-

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

ir: atlo	al Application No	
PCT	99/03319	

Classon of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Refevent to claim No X	C.(Continu	ustion) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	PCT 99/03319
US 4 272 353 A (LAWRANCE RICHARD J ET AL) 9 June 1981 (1981-06-09) 1,12 1,2			Relevant to dain No
DE 30 36 066 A (HOECHST AG) 6 May 1982 (1982-05-06) page 9, line 20 - line 37; claim 1 page 10, line 33 -page 11, line 16 page 7, line 26 -page 8, line 9 Y W0 97 23919 A (HOECHST AG ;BOENSEL HARALD (DE); CLAUSS JOACHIM (DE); DECKERS GREG) 3 July 1997 (1997-07-03) claims 1,3,5,25,29; figure 3 page 14, last paragraph X GB 1 163 149 A (NEDERL. ORG. VOOR TNATUURWSCHAP. ONDERZOEK T.B.H. N. H. EN V.) 4 September 1969 (1969-09-04) claims 1-3 page 2, line 55 - line 79 (US 3 134 696 A (DAVID L. DOUGLAS ET AL) 26 May 1964 (1964-05-26) column 9, line 51 - line 68 (US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26 May 1964 (1964-05-26) column 4, line 46 - line 56; claim 18 BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2 ,X EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)	X	US 4 272 353 A (LAWRANCE RICHARD J ET AL) 9 June 1981 (1981-06-09) column 2, line 15 - line 26 column 9, line 8 - line 11 column 9, line 42 - line 55 column 10, line 6 - line 11	
DE 30 36 066 A (HOECHST AG) 6 May 1982 (1982-05-06) page 9, line 20 - line 37; claim 1 page 10, line 33 -page 11, line 16 page 7, line 26 -page 8, line 9 3,4 WO 97 23919 A (HOECHST AG; BOENSEL HARALD (DE); CLAUSS JOACHIM (DE); DECKERS GREG) 3 July 1997 (1997-07-03) claims 1,35,25,29; figure 3 page 14, last paragraph GB 1 163 149 A (NEDERL. ORG. VOOR TNATUURMSCHAP. ONDERZOEK T.B.H. N. H. EN V.) 4 September 1969 (1969-09-04) claims 1-3 page 2, line 55 - line 79 US 3 134 696 A (DAVID L. DOUGLAS ET AL) 26 May 1964 (1964-05-26) column 9, line 51 - line 68 US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26 May 1964 (1964-05-26) column 4, line 46 - line 56; claim 18 BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2 FP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)	Y	column 1, line 6 - line 13	4
Y		6 May 1982 (1982-05-06) page 9, line 20 - line 37; claim 1 page 10, line 33 -page 11 line 16	
(DE); CLAUSS JOACHIM (DE); DECKERS GREG) 3 July 1997 (1997-07-03)			3,4
TNATUURWSCHAP. ONDERZOEK T.B.H. N. H. EN V.) 4 September 1969 (1969-09-04) claims 1-3 page 2, line 55 - line 79 US 3 134 696 A (DAVID L. DOUGLAS ET AL) 26 May 1964 (1964-05-26) column 9, line 51 - line 68 US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26 May 1964 (1964-05-26) column 4, line 46 - line 56; claim 18 BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2 EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)	Y	3 July 1997 (1997-07-03) claims 1,3,5,25,29: figure 3	3
26 May 1964 (1964-05-26) column 9, line 51 - line 68 US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26 May 1964 (1964-05-26) column 4, line 46 - line 56; claim 18 BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2 EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)	(EN V.) 4 September 1969 (1969-09-04) claims 1-3	1
26 May 1964 (1964-05-26) column 4, line 46 - line 56; claim 18 BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2 X EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)		26 May 1964 (1964-05-26)	1
VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2 EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)		20 May 1964 (1964-05-26)	1
RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 -column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2 PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)		VENNOUL) / December 1999 (1999-19-07)	1,2
Vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02)	,х	column 6. line 35 -column 7 line 4.	2
KAUMPAHKI) 2 October 1996 (1996–10–02)		vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06)	2
		KAUMFAHKI) 2 October 1996 (1996-10-02)	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

n on patent family members

PCT/DE 9 319

Patent document cited in search report		Publication date		tent family iember(s)		Publication date
WO 9723916	A	03-07-1997	DE	19548422	Α	11-09-1997
US 4272353	Α	09-06-1981	JP	1679061	C	13-07-1992
			JP	2004987	В	31-01-1990
			JP	56138874	Α	29-10-1981
DE 3036066	Α	06-05-1982	NONE			
WO 9723919	A	03-07-1997	DE	19548421		11-09-1997
			BR	9612164	Α	13-07-1999
			CA	2241022	Α	03-07-1997
			CZ	9801959		11-11-1998
			EP	0868760	Α	07-10-1998
			PL	327288	Α	07-12-1998
GB 1163149	A	04-09-1969	NL	6515821		07-06-1967
			BE	690720	Α	05-06-1967
			FR.	1499042	A	10-01-1968
US 3134696	Α	26-05-1964	BE	596662		
			FR	1285926		18-07-1962
			FR	1285927		18-07-1962
			GB	894530		
			NL	128269		
			NL	257579		
			US	3134697	' A	26-05-1964
US 3134697	Α	26-05-1964	BE	596662		10.07.454
			FR	1285926		18-07-1962
		,	FR	1285927		18-07-1962
			GB	894530		
			NL	128269		
		•	NL	257579		00 00 100
			US	3134696) A 	26-05-1964
BE 1011693	Α	07-12-1999 	NONE			
EP 0926753	Α	30-06-1999	DE	19757492	2 A	01-07-1999
JP 10064574	A	06-03-1998	NONE			
DE 19509749	Α	02-10-1996	FR	273184		20-09-1996
			US	5761793	3 A	09-06-1998

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Into	Aktenzeichen	ı
PCT.	9/03319	

A KLASS	CIEIZIE DUNO DES	PCT/	9/03319
IPK 7	SIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES H01M8/10 H01M4/88 C25B9	/00	
Nach der I	nternationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen ERCHIERTE GEBIETE	Klassifikation und der IPK	
Recherchie	erter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationes)	/mbole)	
1PK 7	HO1M C25B	,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,	
Recherchie	erte aber nicht zum Mindestnriftstoff gabass		
	erte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichunger	n, soweit diese unter die recherchierten	Gebiete fallen
Während d	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenban	k (Name der Deterbank und auf un	
		WATER OF BATHINGS UND 9911. VOIW	endele Suchbegriffe)
	·		•
		_	
C. ALS WE	BEZEICHTUNG OF VOTER THE		
	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Ang	gabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 97 23916 A (HOECHST AG ;CLAU	SS JOACHIM	12 5 7
	(DE); BOENSEL HARALD (DE); DECK 3. Juli 1997 (1997-07-03)	ERS GREG)	1-3,5,7
	Seite 7, Absatz 2 - letzter Abs Seite 9, Absatz 1	atz	
	Seite 11. Absatz 4		
	Seite 18, Absatz 2	••	
	Seite 18, letzter Absatz -Seite 3; Abbildung 5	19, Absatz	
	Seite 20, Zeile 8 - Zeile 11 Seite 26, Absatz 2 - Absatz 3; A	Nhh i 1 dun -	
ĺ	3,10	abb i raungen	
Υ	Ansprüche 16,19,32,39		
		,	4
		-/ - -	
	·		
χ Weiter entner	re Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu hmen	X Siehe Anhang Patentfamilie	
→ veiolienti	Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : lichung, die den altgemeinen Stand der Technik definiert, ht als basonders hedeutsen er der Technik definiert,	"T" Spätere Veröffentlichung die nach	dem internationalen Anmoldodatu
E" älteres Do	okument das jedoch asst em adas and	Anmeldung night kollidiert sonder	ntlicht worden ist und mit der rn nur zum Verständnis des der nzips oder der ihr zugrundeliegenden
L" Veröffentii	chung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelbatt as	"X" Veröffentlichung von besonderer E	ledeutung: die beanspruchte Erlindung
anderen soli oder	n zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer im Rechercherbericht genannten Veröffentlichungsdatum einer die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie lichung, die eleb wid im zu einem angegeben ist (wie lichung, die eleb wid im zu einem zu einem zu einem zu einem zu einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie lichung die eleb wid im zu einem zu ein	kann allein aufgrund dieser Veröff erfinderischer Tätigkeit beruhend	entlichung nicht als neu oder auf betrachtet werden
		Weidell Wein die Veröffentlichung	mit aimes ada
o" Veröffentli	ichung, die vor dem internationalen. Anmeldedatum, aber nach	diese Verbindung für einen Fachn	nann naheliegend ist
atum des Abs	schlusses der internationalen Recherche	"&" Veröffentlichung, die Mitglied derse Absendedatum des internationalei	
27.	April 2000		
	tanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	08/05/2000	
	Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bediensteter	
	Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016	D'hondt, J	
HAN DOTED A			

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

PCT/DE 9.3319

		PCT/DE 9. 319
C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	nenden Teile Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 272 353 A (LAWRANCE RICHARD J ET AL) 9. Juni 1981 (1981-06-09) Spalte 2, Zeile 15 - Zeile 26 Spalte 9, Zeile 8 - Zeile 11 Spalte 9, Zeile 42 - Zeile 55 Spalte 10, Zeile 6 - Zeile 11 Spalte 1, Zeile 6 - Zeile 13	1,2
Y	Sparte 1, Zerre 6 - Zerre 13	4
X	DE 30 36 066 A (HOECHST AG) 6. Mai 1982 (1982-05-06) Seite 9, Zeile 20 - Zeile 37; Anspruch 1 Seite 10, Zeile 33 -Seite 11, Zeile 16 Seite 7, Zeile 26 -Seite 8, Zeile 9	1
Y	, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	3,4
Y	WO 97 23919 A (HOECHST AG ;BOENSEL HARALD (DE); CLAUSS JOACHIM (DE); DECKERS GREG) 3. Juli 1997 (1997-07-03) Ansprüche 1,3,5,25,29; Abbildung 3 Seite 14, letzter Absatz	3
X	GB 1 163 149 A (NEDERL. ORG. VOOR TNATUURWSCHAP. ONDERZOEK T.B.H. N. H. EN V.) 4. September 1969 (1969-09-04) Ansprüche 1-3 Seite 2, Zeile 55 - Zeile 79	1
X	US 3 134 696 A (DAVID L. DOUGLAS ET AL) 26. Mai 1964 (1964-05-26) Spalte 9, Zeile 51 - Zeile 68	1
X	US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26. Mai 1964 (1964-05-26) Spalte 4, Zeile 46 - Zeile 56; Anspruch 18	1
E	BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7. Dezember 1999 (1999-12-07) Ansprüche 1,2; Abbildungen 1,2	1,2
P,X	EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30. Juni 1999 (1999-06-30) Spalte 6, Zeile 35 -Spalte 7, Zeile 4; Ansprüche 1,2,13-18; Abbildung 2	2
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30. Juni 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6. März 1998 (1998-03-06) Zusammenfassung	2
A	DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2. Oktober 1996 (1996-10-02) in der Anmeldung erwähnt	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichu

zur seiben Patenttamilie gehören

PCT/D 9/03319

lm Recherch ngeführtes Pat		ent	Datum der Veröffentlichung		tglied(er) der atentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 9723	916	Α	03-07-1997	DE	19548422	A	11-09-1997
US 4272	353	Α	09-06-1981	JP JP JP	1679061 2004987 56138874	В	13-07-1992 31-01-1990 29-10-1981
DE 3036	066	Α	06-05-1982	KEIN	E		
WO 9723	919	A	03-07-1997	DE BR CA CZ EP PL	19548421 9612164 2241022 9801959 0868760 327288	A A A	11-09-1997 13-07-1999 03-07-1997 11-11-1998 07-10-1998 07-12-1998
GB 1163	149	A	04-09-1969	NL BE FR	6515821 690720 1499042	A	07-06-1967 05-06-1967 10-01-1968
US 3134	696	A	26-05-1964	BE FR FR GB NL NL US	596662 1285926 1285927 894530 128269 257579 3134697	A A C A	18-07-1962 18-07-1962 26-05-1964
US 3134	1697	A	26-05-1964	BE FR FR GB NL NL	596662 1285926 1285927 894530 128269 257579 3134696	A A A A C	18-07-1962 18-07-1962 26-05-1964
BE 1011	1693	Α	07-12-1999	KEI	NE		
EP 0926	5753	Α	30-06-1999	DE	19757492	Α	01-07-1999
JP 1006	54574	Α	06-03-1998	KEII	VE		
DE 1950	9749	A	02-10-1996	FR US	2731844 5761793		20-09-1996 09-06-1998